

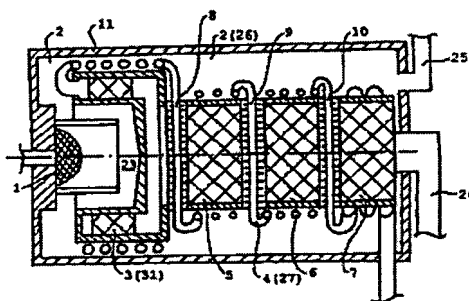
Device for producing hydrogen used for operating fuel cells comprises a reformer for converting hydrocarbon gas and water into hydrogen and further reformer products connected to a heat

Patent number: DE10057537
Publication date: 2002-06-06
Inventor: DZUBIELLA MANFRED (DE); HEIKRODT KLAUS (DE)
Applicant: VIESSMANN WERKE KG (DE)
Classification:
- **international:** B01J8/00; B01J8/04; C01B3/38; C01B3/48; C01B3/58; H01M8/06; B01J8/00; B01J8/04; C01B3/00; H01M8/06; (IPC1-7): C01B3/32
- **european:** B01J8/00L; B01J8/04D4B; B01J8/04H; C01B3/38; C01B3/38B; C01B3/48; C01B3/58B; H01M8/06B2C; H01M8/06C2
Application number: DE20001057537 20001120
Priority number(s): DE20001057537 20001120

Report a data error here

Abstract of DE10057537

Device for producing hydrogen comprises a reformer (3) for converting hydrocarbon gas and water into hydrogen and further reformer products connected to a heat exchanger (4) for pre-heating the hydrocarbon gas and the water. The heat exchanger is connected to further heat exchangers (8, 9, 10) forming a catalytic heat transfer fitting a temperature profile. Preferred Features: All components are arranged in a housing (11) with corresponding feeding and removal connections. The reformer is provided with a heat producer to further heat the hydrocarbon gas and the water. A burner (1) is provided to burn a part of the hydrocarbon gas fed to the reformer. The reformer is cylindrical or pot-shaped and partially surrounds the burner. The burner is provided with a waste gas guide (2) which is likewise connected to the heat exchanger (4) forming a catalytic heat transfer fitting a temperature profile. The waste gas guide is in the form of an annular channel which encloses the reformer and the catalyst stages (5, 6, 7).



Data supplied from the esp@cenet database - Worldwide



①9 BUNDESREPUBLIK
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES
PATENT- UND
MARKENAMT

⑫ **Offenlegungsschrift**
⑩ **DE 100 57 537 A 1**

⑤ Int. Cl. 7:
C 01 B 3/32

⑳ Aktenzeichen: 100 57 537.4
㉔ Anmeldetag: 20. 11. 2000
㉕ Offenlegungstag: 6. 6. 2002

DE 100 57 537 A 1

㉑ Anmelder:
Viessmann Werke GmbH & Co., 35108 Allendorf,
DE

㉒ Vertreter:
Patentanwälte G. Wolf und M. Wolf, 63456 Hanau

㉓ Erfinder:
Dzubiella, Manfred, Dr., 35066 Frankenberg, DE;
Heikrodt, Klaus, Dr., 35108 Allendorf, DE

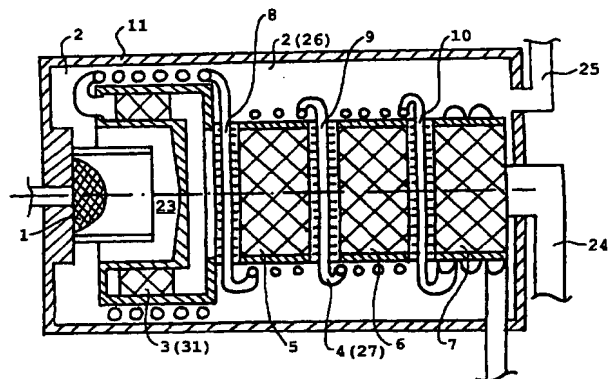
㉔ Entgegenhaltungen:
DE 199 61 482 A1
DE 693 14 245 T2
WO 00 66 487 A1

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

Prüfungsantrag gem. § 44 PatG ist gestellt

㉕ Apparat zur Erzeugung von Wasserstoff

㉖ Die Erfindung betrifft einen Apparat zur Erzeugung von Wasserstoff zum Betrieb von Brennstoffzellen, umfassend einen Reformer (3) zur Umwandlung von Kohlenwasserstoffgas und Wasser in Wasserstoff und weiterer Reformer-Produkte, wobei dem Reformer (3) zur chemischen Aufbereitung der Reformer-Produkte mehrere reaktionsspezifisch angepaßte und mit temperaturspezifisch ausgelegten Wärmetauschern (8, 9, 10) versehene, Wärme abgebende Katalysatorstufen (5, 6, 7) mit einem vom Reformer (3) zur letzten Katalysatorstufe (7) von hoch nach tief abgestuften Temperaturprofil nachgeschaltet sind. Nach der Erfindung ist vorgesehen, dass dem Reformer (3) zur Vorheizung mindestens des Kohlenwasserstoffgases und des Wassers mindestens ein Wärmetauscher (4) vorgeschaltet ist, der unter Ausbildung einer katalysatorstufen- und temperaturprofilangepaßten Wärmeübertragung mit den nachgeschalteten Wärmetauschern (8, 9, 10) verbunden ist.



DE 100 57 537 A 1

[0001] Die Erfindung betrifft einen Apparat zur Erzeugung von Wasserstoff zum Betrieb von Brennstoffzellen gemäß dem Oberbegriff des Anspruchs 1.

[0002] Die einleitend im Oberbegriff des Anspruchs 1 angeführten, apparativen Komponenten sind zur Gasaufbereitung bzw. zur Erzeugung von Wasserstoff bekannt und erforderlich. Sie sind, soweit es die Wärmetauscher und Katalysatoren betrifft, im Sinne von Reaktionsstufen anlagenartig miteinander verschaltet (siehe zum Stand der Technik beispielsweise Nerlich, TAB 8/2000, S. 30, Bild 2), wobei es sich bei den Reaktionsstufen im wesentlichen um den Reformier, die Shift-Konverter (Hochtemperatur- und Niedertemperatur-Konverter) und die selektive Oxidationsstufe handelt. In einem erdgasbetriebenen Reformier erfolgt bei einem Temperaturniveau von 800°C bis 900°C die Umwandlung von CH₄ und Wasser in H₂ (endotherme Reaktion) und weiterer Reformierprodukte, nämlich insbesondere CO, das in den nachfolgenden Stufen mit dem noch verbliebenen Wasser in einer exothermen Reaktion ebenfalls in H₂ und weiteres CO₂ umgesetzt wird.

[0003] Die im Oberbegriff des Anspruchs 1 genannten temperaturspezifisch ausgelegten Wärmetauscher sind derart bezüglich ihrer Zuordnung zur Reaktionsstrecke ausgebildet, dass sie zum Einen dem jeweils zu fordernden Temperaturniveau genügen, und dass sie zum Anderen längs der Reaktionsstrecke die jeweils zu fordernde chemische Reaktion in den reaktionsspezifisch ausgelegten Katalysatoren fördern.

[0004] Der einleitend beschriebene Apparat zur Erzeugung von Wasserstoff wird derzeit, soweit bekannt, bisher lediglich im anlagentechnischen Maßstab eingesetzt, somit also in einer für eine dezentrale Energieversorgung pro Haushalt ungeeigneten Größe. Hinzukommt, dass die verwendeten Komponenten vergleichsweise weit entfernt voneinander angeordnet sind, d. h. die entstehenden Wärmen werden energetisch nicht optimal ausgenutzt.

[0005] Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, die für die Umwandlung der zugeführten Edukte in den Reformier eingebrachte Energie so effizient wie möglich auszunutzen, und zwar verbunden mit der Maßgabe, die daran beteiligten apparativen Komponenten so kompakt wie möglich zusammenzufassen.

[0006] Diese Aufgabe ist mit einem Apparat der eingangs genannten Art nach der Erfindung durch die im Kennzeichen des unabhängigen Anspruchs 1 angeführten Merkmale gelöst.

[0007] Wesentlich für den erfindungsgemäßen Apparat ist also, dass der komplette Energiebedarf für die Eduktvorwärmung dem energieabgebenden Produktstrom (exotherme Reformierproduktaufbereitungsreaktion) hinter dem Reformier entzogen wird, d. h. im Apparat findet bei kompakter Bauweise zwischen den einzelnen Komponenten ein hoch-effizienter Wärmeaustausch mit ausgeglichenen Energiebilanzen statt. Der erfindungsgemäße Apparat bildet dabei gewissermaßen ein temperaturgestuftes Reaktionsrohr.

[0008] Die Formulierung, dem Reformier sei zur Vorheizung "mindestens" des Kohlenwasserstoffgases und des Wassers ein Wärmetauscher vorgeschaltet, weist darauf hin (was auch später bei den Ausführungen zum autothermen Reformier noch genauer erläutert wird), dass dem Reformier bei Bedarf auch noch andere Edukte zuführbar sind.

[0009] Die Bedingung "mindestens ein Wärmetauscher" offenbart ferner die Möglichkeit, die Eduktströme, also insbesondere das Kohlenwasserstoffgas und das Wasser, separat vorzuheizen und dem Reformier getrennt zuzuführen, was hinsichtlich der weiter unten noch genauer beschriebenen

Wärmebilanzen insbesondere weitere Grenzen für die konstruktiven Gestaltungsmöglichkeiten schafft.

[0010] Vorteilhafte Weiterbildungen ergeben sich nach den Unteransprüchen.

5 [0011] Nur vorsorglich sei dabei darauf hingewiesen, dass der mit einem derart ausgebildeten Apparat erzeugte Wasserstoff bezüglich seiner Verwendung nicht zwingend einer Brennstoffzelle zugeführt werden muss, obgleich Zielsetzung und Lösung an einer solchen Verwendung insbesondere orientiert sind.

10 [0012] Der erfindungsgemäße Apparat zur Erzeugung von Wasserstoff einschließlich seiner vorteilhaften Weiterbildungen wird nachfolgend anhand der zeichnerischen Darstellung von Ausführungsbeispielen näher erläutert.

15 [0013] Es zeigt schematisch

[0014] Fig. 1 einen Längsschnitt durch eine erste Ausführungsform des erfindungsgemäßen Apparats mit allothermer Reformierung;

[0015] Fig. 2 das über die Reaktionsstrecke des Apparates gemäß Fig. 1 abgestufte Temperaturprofil;

[0016] Fig. 3 einen Schaltplan des Apparates gemäß Fig. 1;

[0017] Fig. 4 einen Längsschnitt durch eine zweite Ausführungsform des erfindungsgemäßen Apparats mit autothermer Reformierung;

[0018] Fig. 5 einen Schaltplan des Apparates gemäß Fig. 4 und

[0019] Fig. 6 die Verschaltung des erfindungsgemäßen Apparates mit einer Brennstoffzelle und einem Wärmetauscher.

30 [0020] Der Apparat gemäß Fig. 1 umfasst einen Reformier 3 zur Umwandlung von Kohlenwasserstoffgas und Wasser in Wasserstoff und weiterer Reformier-Produkte. Dem Reformier 3 sind dabei zur chemischen Aufbereitung der Reformier-Produkte mehrere reaktionsspezifisch angepasste und mit temperaturspezifisch ausgelegten Wärmetauschern 8, 9, 10 versehene, Wärme abgebende Katalysatorstufen 5, 6, 7 mit einem vom Reformier 3 zur letzten Katalysatorstufe 7 von hoch nach tief abgestuften Temperaturprofil nachgeschaltet.

[0021] Bezüglich des Temperaturprofils wird auf Fig. 2 verwiesen. Im Bereich des Reformiers 3 beträgt die Temperatur zur Umwandlung des Kohlenwasserstoffgases in Wasserstoff und weitere Reformier-Produkte (bei Verwendung von Erdgas sind das insbesondere Wasser, Kohlenmonoxid und Kohlendioxid) etwa 800°C bis 900°C. Mit dem ersten Wärmetauscher 8 wird die Temperatur des entstandenen Wasserstoffs und der Reformier-Produkte auf etwa 400°C abgesenkt, um in der ersten Katalysatorstufe 5 (sogenannter Hochtemperatur-Shift) insbesondere den Anteil an Kohlenmonoxid zu reduzieren. In der nachfolgenden Katalysatorstufe 6 (sogenannter Niedertemperatur-Shift) wird der größte Teil des noch verbliebenen Rests an Kohlenmonoxid bei etwa 200°C weiter in Kohlendioxid umgewandelt. Die dritte Katalysatorstufe 7 (sogenannte Selektive-Oxidations-Stufe), die etwa bei einer Temperatur von 100°C arbeitet, dient schließlich zur letzten Reinigung der Reformier-Produkte von für die Brennstoffzelle schädlichem Kohlenmonoxid, das nach der zweiten Katalysatorstufe 6 nur noch in der sehr niedrigen Größenordnung von etwa 10 ppm vorliegt.

[0022] Wesentlich für diesen Apparat ist nun, dass dem Reformier 3 zur Vorheizung mindestens des Kohlenwasserstoffgases und des Wassers ein Wärmetauscher 4 vorgeschaltet ist, der unter Ausbildung einer katalysatorstufen- und temperaturprofilangepassten Wärmeübertragung mit den nachgeschalteten Wärmetauschern 8, 9, 10 verbunden ist. [0023] Wie erwähnt, ist auch die Verwendung mehrerer

Wärmetauscher 4 zur separaten Vorheizung der Eduktströme möglich; einer besonderen zeichnerischen Darstellung bedarf es dieserhalb aber nicht, da diese Ausführungsform auf Basis der Fig. 1 bis 6 ohne weiteres vorstellbar ist.

[0024] Dabei ist es zweckmäßig und vorteilhaft, alle apparativen Komponenten in einem vorzugsweise isolierten Gehäuse 11 mit entsprechenden Zu- und Abfuhranschlüssen anzuordnen.

[0025] Gemäß der Ausführungsform nach Fig. 1 ist ferner vorgesehen, dass der Reformer 3 zur weiteren Aufheizung des Kohlenwasserstoffgases und des Wassers mit einem Wärmeerzeuger, vorzugsweise einem Brenner 1, versehen ist. Dieser Brenner 1, der beispielsweise als halbkugelförmiger Flächenbrenner ausgebildet sein kann, wird vorzugsweise mit einem Teil des dem Reformer 3 zugeführten Kohlenwasserstoffgases (und zusätzlich zugeführter Luft bzw. Sauerstoff) betrieben. Da bei dieser Ausführungsform dem Reformer 3 somit für den Umwandlungsprozess gewissermaßen von außen Energie zugeführt werden muss, nennt man dessen Funktionsweise auch allotherm.

[0026] Um die vom halbkugelförmigen Brenner 1 abgegebene Energie möglichst günstig auf den Reformer 3 zu übertragen, ist ferner vorgesehen, dass der Reformer 3 wahlweise zylinder- oder topfförmig ausgebildet ist und den Brenner 1 zumindest teilweise umschließt.

[0027] Zur Abführung des bei der Verbrennung entstehenden Abgases ist der Brenner 1 mit einer Abgasführung 2 versehen, die vorteilhaft ebenfalls unter Ausbildung einer temperaturprofilangepassten Wärmeübertragung mit dem vorgeschalteten Wärmetauscher 4 verbunden ist bzw. der Wärmetauscher 4 ist, wie dargestellt, innerhalb der Abgasführung 2 angeordnet, wobei die Abgasführung 2 in Form eines den Reformer 3 und die Katalysatorstufen 5, 6, 7 umschließenden Ringkanals 26 ausgebildet ist. Dabei ist der Wärmetauscher 4 zur Vorheizung des Kohlenwasserstoffgases und des Wassers in Form einer in der ringkanalförmigen Abgasführung 2 angeordneten Rohrwendel 27 ausgebildet ist.

[0028] Verfahrensmäßig ausgedrückt, funktioniert der erfindungsgemäße Apparat wie folgt (siehe hierzu neben Fig. 1 insbesondere die abstrahierte Darstellung gemäß Fig. 3, aber auch Fig. 6):

Der unmittelbar in den allothermen Reformer 3 integrierte Brenner 1 wird mit Erdgas (CH_4) und Luft betrieben, wobei ein Teil des zugeführten Erdgases durch eine Leitung 20 einer Mischstelle 21 zugeleitet und dort mit durch eine weitere Leitung 22 zugeführtem Wasser bzw. Wasserdampf vermischt wird, von wo aus das Gemisch in die den Wärmetauscher 4 bildende Rohrwendel gelangt.

[0029] Diese Rohrwendel erstreckt sich mit ihrer ganzen Länge in der Abgasführung 2 und mündet, in Bezug auf den Anströmquerschnitt des Reformers 3 strömungs- und verteilungsgünstig angeschlossen (nicht besonders dargestellt, da ohne weiteres vorstellbar) in den den Reformer 3 bildenden Katalysator 31, der topfförmig die Brennkammer 23 umgibt.

[0030] Die Abgase des Brenners 1 gelangen aus der Brennkammer 23 in die Abgasführung 2 und heizen dabei die im Gegenstrom in der Rohrwendel strömenden Edukte auf, die im Katalysator 31 bei etwa 800°C bis 900°C in ihre Komponenten zerlegt werden und zu neuen Verbindungen rekombinieren, die danach, wie erwähnt, zwecks Reinigung die nachgeschalteten Katalysatoren 5, 6, 7 passieren, wobei H_2 und H_2O (Dampf) den Apparat am Produktabfuhranschluss 24 verlassen und von da aus ihrer Verwendung, beispielsweise einer Brennstoffzelle 40, zugeführt werden.

[0031] Orientiert am sich über die ganze Reaktionsstrecke ergebenden und in Fig. 2 dargestellten Temperaturprofil verläßt das Abgas am Abgasabfuhranschluss 25 die Abgasfüh-

rung 2 mit etwa 120°C und kann zweckmäßig einem externen Wärmetauscher 50 (siehe Fig. 6) zugeführt werden, in dem aus der Brennstoffzelle anfallendes Wasser aufgeheizt und der vorerwähnten Mischstelle 21 zugeführt wird.

[0032] Die an den einzelnen Wärmetauschern 4, 8, 9, 10 in gestuften Temperaturniveaus stattfindende Wärmeübertragung bedarf einer genauen Auslegung der auftretenden Wärmeströme, die sich bekanntermaßen beispielsweise durch die Größendimensionierung der Wärmetauscherflächen beeinflussen lassen.

[0033] Wesentlich für die Auslegung ist dabei folgendes: Die in den Wärmetauscher 4 einströmenden Reformer-Edukte werden, je näher sie zum Reformer 3 gelangen, durch das in die entgegengesetzte Richtung strömende Abgas des Brenners immer weiter aufgeheizt. Die Reformer-Produkte dagegen, die mit etwa 800°C den Reformer 3 verlassen, müssen mittels der Wärmetauscher 8, 9, 10 stufenweise auf etwa 400°C , 200°C und 100°C abgekühlt werden. Darüber hinaus muss auch noch zusätzlich in den Katalysatorstufen 5, 6, 7 aufgrund der chemischen Aufbereitung (Oxidation des Kohlenmonoxids) entstandene Wärme (exotherme Reaktion) abgeführt werden. Die Wärmetauscher 8, 9, 10 sind dazu entweder direkt oder indirekt unter Zwischenschaltung der Abgasführung 2 mit dem Wärmetauscher 4 zur Vorheizung der Reformer-Edukte verbunden, d. h. auf diese Weise wird anfallende Prozesswärme optimal ausgenutzt.

[0034] Im Gegensatz zu dem in Fig. 1 dargestellten Apparat erfolgt in Fig. 4 die Wärmeeinbringung in den Reformer 3 zur Umwandlung des Kohlenwasserstoffgases in Wasserstoff nicht durch einen Brenner, sondern vielmehr dadurch, dass dem Kohlenwasserstoffgas zusätzlich Luft zugeführt wird, die (entsprechende Vorheizung des Gemisches vorausgesetzt) zu einer flammenfreien Verbrennung eines Teils des Kohlenwasserstoffgases innerhalb des Reformers 3 führt. Durch entsprechende Dosierung der Luftmenge kann dabei die Verbrennung und damit die Temperatur genau gesteuert werden.

[0035] Die bei der flammenfreien Verbrennung entstehenden Abgase werden bei dieser autothermen Variante durch die in diesem Fall auch als Abgasführung 2 ausgebildeten Katalysatorstufen 5, 6, 7 zum Anschluss 24, 25 abgeführt, was an deren zuvor beschriebener Funktionsweise aber im übrigen nichts ändert.

[0036] Zur Vorheizung des Gemisches aus Kohlenwasserstoffgas, Wasser und Luft ist vorgesehen, dass der Wärmetauscher 4 in Form einer den Reformer 3 und die Katalysatorstufen 5, 6, 7 umschließenden Rohrwendel 27 ausgebildet ist.

[0037] Fig. 5 stellt den Edukt- und Produkt-Strom für den autothermen Apparat nochmals abstrahiert dar.

Bezugszeichenliste

- 1 Brenner
- 2 Abgasführung
- 3 Reformer
- 4 Wärmetauscher
- 5 Katalysatorstufe
- 6 Katalysatorstufe
- 7 Katalysatorstufe
- 8 Wärmetauscher
- 9 Wärmetauscher
- 10 Wärmetauscher
- 11 Gehäuse
- 20 Leitung
- 21 Mischstelle
- 22 Leitung

23 Brennkammer
 24 Produktabfuhranschluss
 25 Abgasabfuhranschluss
 26 Ringkanal
 27 Rohrwendel
 31 Katalysator des Reformers
 40 Brennstoffzelle
 50 Wärmetauscher

Patentansprüche

1. Apparat zur Erzeugung von Wasserstoff zum Betrieb von Brennstoffzellen, umfassend einen Reformer (3) zur Umwandlung von Kohlenwasserstoffgas und Wasser in Wasserstoff und weiterer Reformer-Produkte, wobei dem Reformer (3) zur chemischen Aufbereitung der Reformer-Produkte mehrere reaktionsspezifisch angepasste und mit temperaturspezifisch ausgelegten Wärmetauschern (8, 9, 10) versehene, Wärme abgebende Katalysatorstufen (5, 6, 7) mit einem vom Reformer (3) zur letzten Katalysatorstufe (7) von hoch nach tief abgestuften Temperaturprofil nachgeschaltet sind, **dadurch gekennzeichnet**, dass dem Reformer (3) zur Vorheizung mindestens des Kohlenwasserstoffgases und des Wassers mindestens ein Wärmetauscher (4) vorgeschaltet ist, der unter Ausbildung einer katalysatorstufen- und temperaturprofilangepassten Wärmeübertragung mit den nachgeschalteten Wärmetauschern (8, 9, 10) verbunden ist.
2. Apparat nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass alle apparativen Komponenten in einem Gehäuse (11) mit entsprechenden Zu- und Abfuhranschlüssen angeordnet sind.
3. Apparat nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass der Reformer (3) zur weiteren Aufheizung des Kohlenwasserstoffgases und des Wassers mit einem Wärmeerzeuger versehen ist.
4. Apparat nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, dass der Wärmeerzeuger ein Brenner (1) ist.
5. Apparat nach Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, dass der Brenner (1) zum Verbrennen eines Teiles des dem Reformer (3) zugeführten Kohlenwasserstoffgases ausgebildet ist.
6. Apparat nach Anspruch 4 oder 5, dadurch gekennzeichnet, dass der Reformer (3) wahlweise zylinder- oder topfförmig ausgebildet ist und den Brenner (1) zumindest teilweise umschließt.
7. Apparat nach einem der Ansprüche 4 bis 6, dadurch gekennzeichnet, dass der Brenner (1) mit einer Abgasführung (2) versehen ist, die ebenfalls unter Ausbildung einer temperaturprofilangepassten Wärmeübertragung mit dem vorgeschalteten Wärmetauscher (4) verbunden ist.
8. Apparat nach Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, dass die Abgasführung (2) in Form eines den Reformer (3) und die Katalysatorstufen (5, 6, 7) umschließenden Ringkanals (26) ausgebildet ist.
9. Apparat nach Anspruch 8, dadurch gekennzeichnet, dass der Wärmetauscher (4) zur Vorheizung des Kohlenwasserstoffgases und des Wassers in Form einer in der ringkanalförmigen Abgasführung (2) angeordneten Rohrwendel (27) ausgebildet ist.
10. Apparat nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass der Reformer (3) als autothermer Reformer zur flammenfreien Verbrennung von über den Wärmetauscher (4) zugeführtem Kohlenwasserstoffgas, Wasser und Luft ausgebildet ist.
11. Apparat nach Anspruch 10, dadurch gekennzeichnet,

net, dass bei der flammenfreien Verbrennung die Katalysatorstufen (5, 6, 7) zusätzlich als Abgasführung (2) ausgebildet sind.

12. Apparat nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass der Wärmetauscher (4) zur Vorheizung des Kohlenwasserstoffgases, des Wassers und der Luft in Form einer den Reformer (3) und die Katalysatorstufen (5, 6, 7) umschließenden Rohrwendel (27) ausgebildet ist.

13. Apparat nach einem der Ansprüche 1 bis 12, dadurch gekennzeichnet, dass dem Reformer (3) mehrere Wärmetauscher (4) zur separaten Vorheizung mindestens des Kohlenwasserstoffgases und des Wassers vorgeschaltet sind.

Hierzu 5 Seite(n) Zeichnungen

- Leerseite -

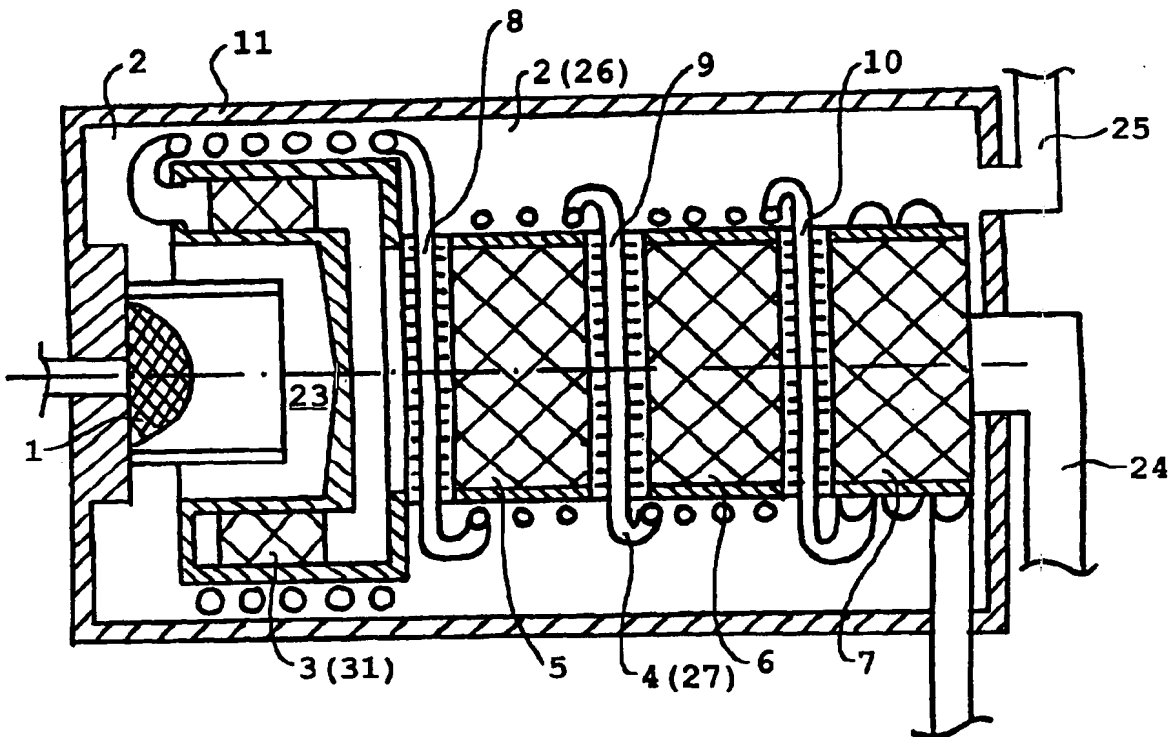


Fig. 1

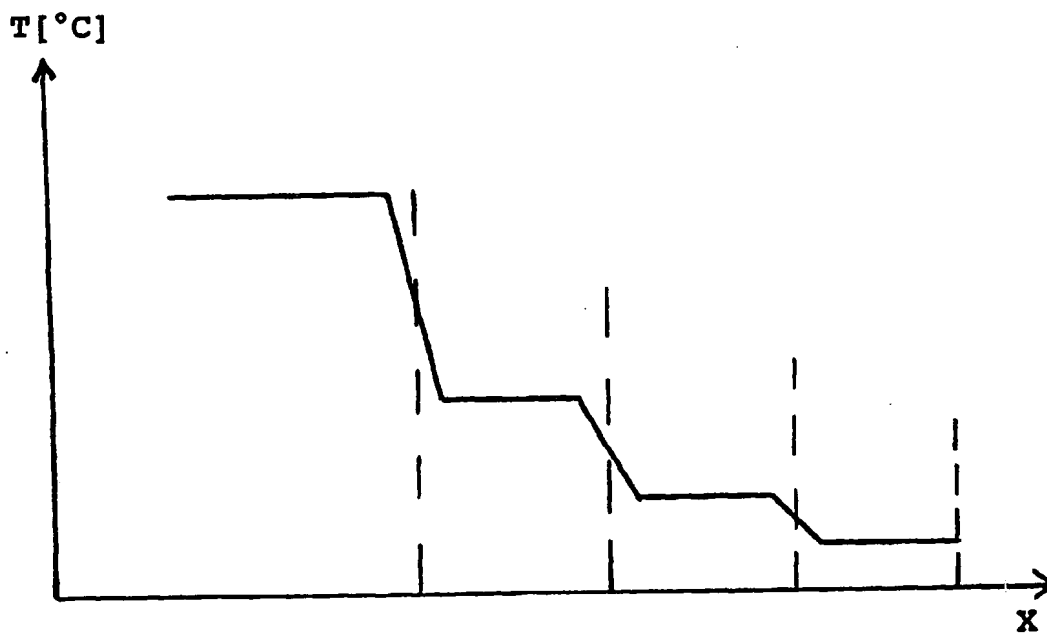


Fig. 2

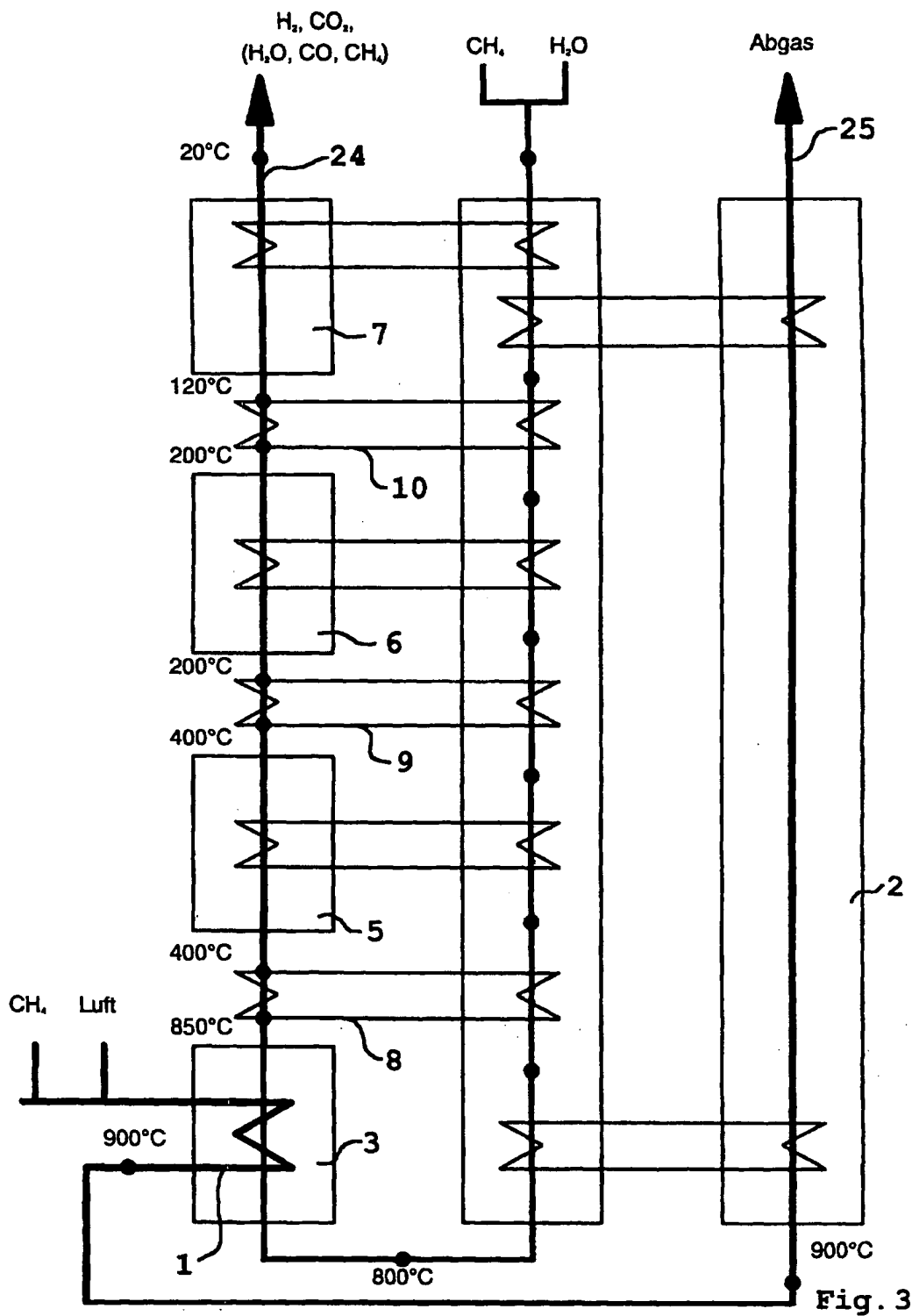


Fig. 3

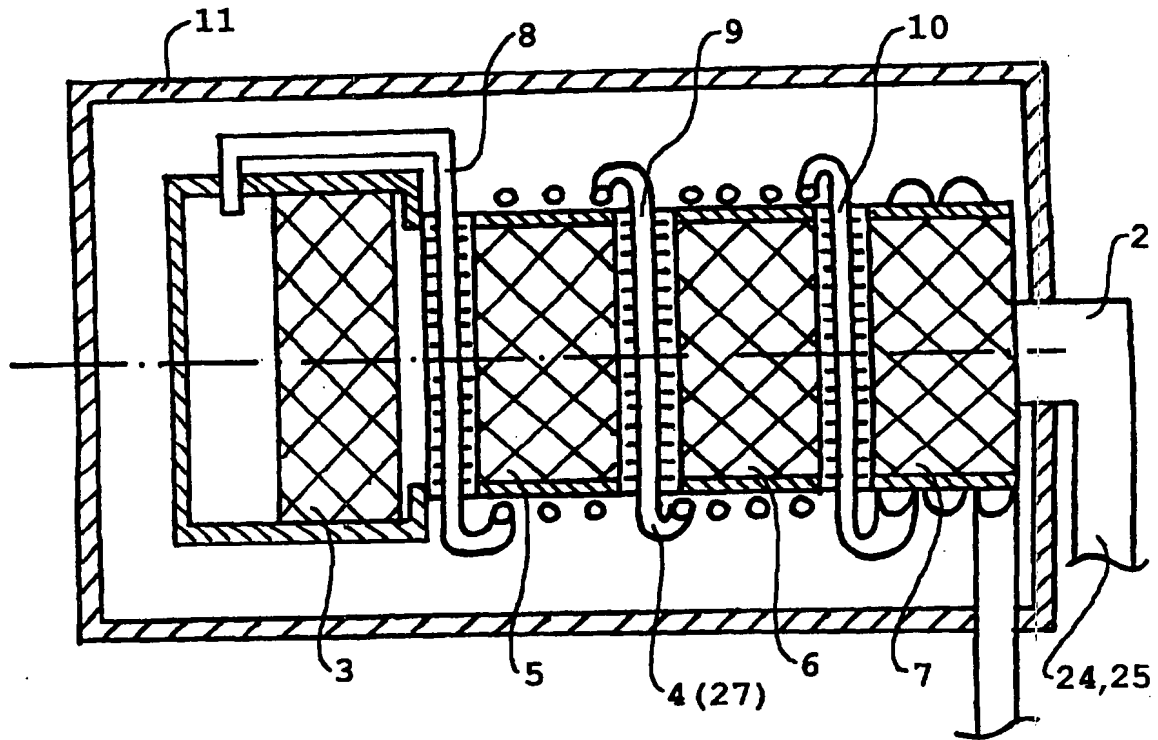


Fig. 4

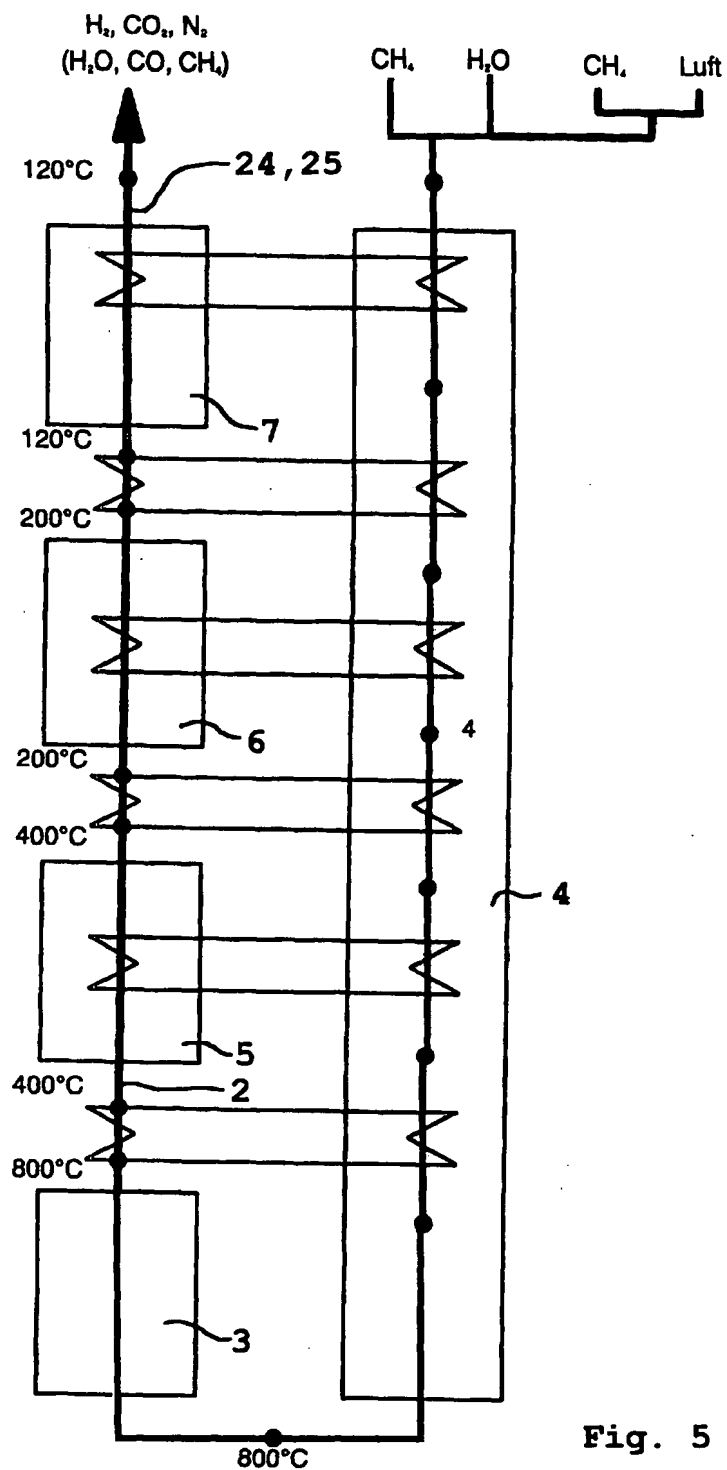


Fig. 5

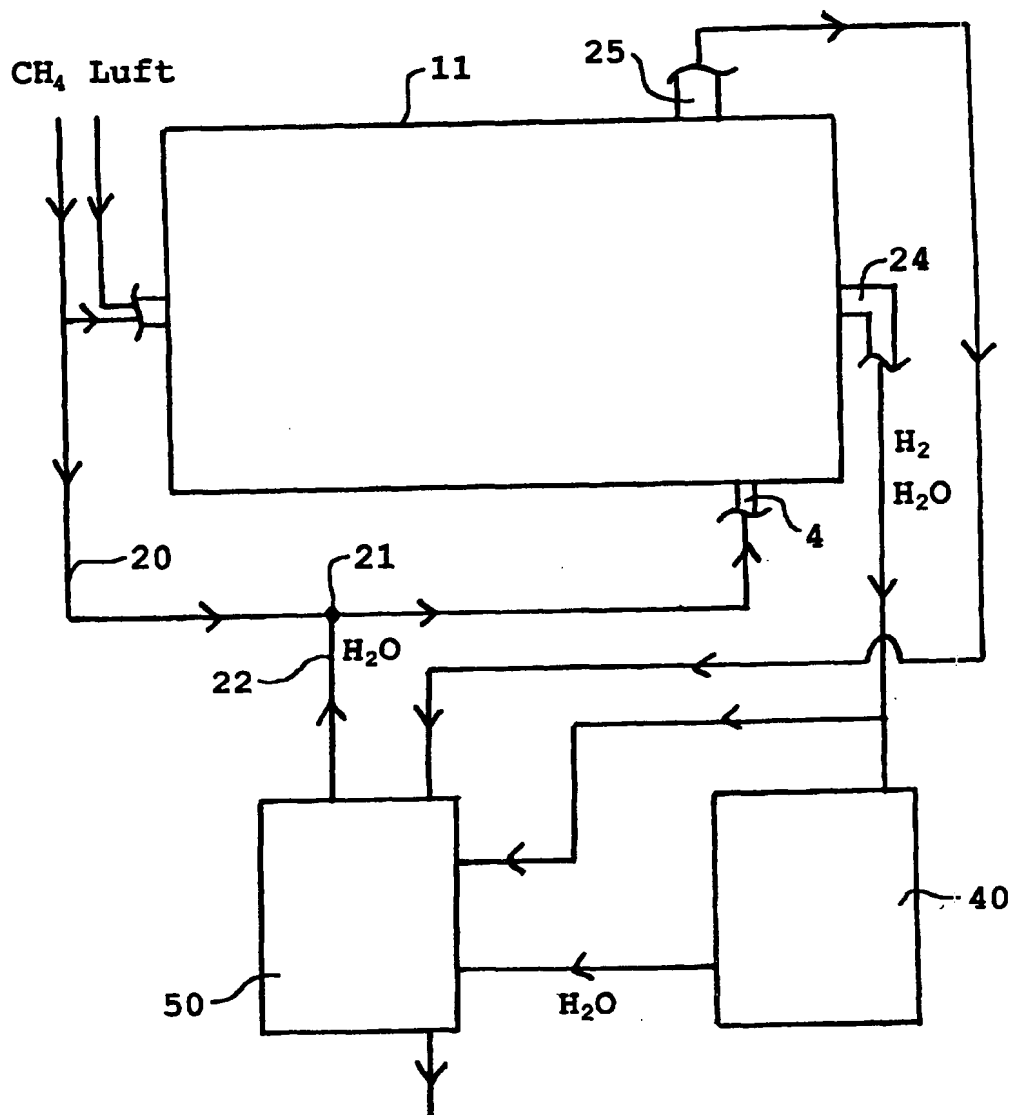


Fig. 6